

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年12 月4 日 (04.12.2003)

PCT

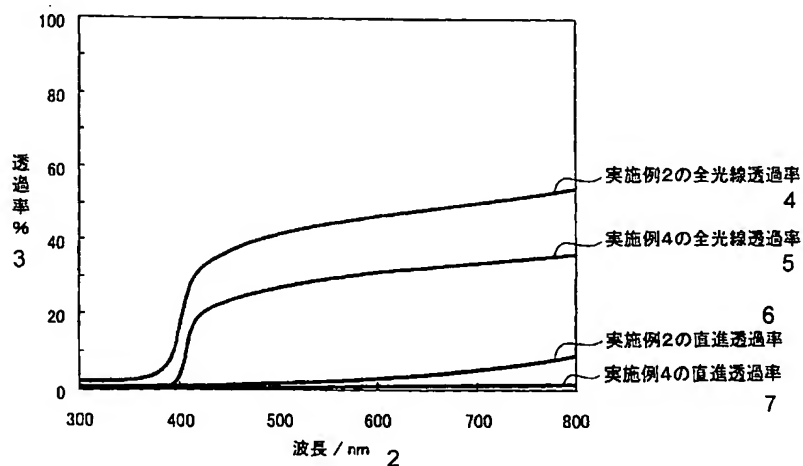
(10) 国際公開番号
WO 03/099944 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C09D 11/00, C01B 33/12, 13/14, C03B 37/005, C01F 7/02, C03C 14/00, C08K 3/22, C08L 101/00, A61K 7/00, 7/48, 7/027, 7/031, 7/032
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 横井 浩司 (YOKOI, Koji) [JP/JP]; 〒541-8559 大阪府 大阪市中央区北浜 四丁目 7 番 2 8 号 日本板硝子株式会社内 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/05868
- (22) 国際出願日: 2003 年5 月12 日 (12.05.2003)
- (74) 代理人: 重野 剛 (SHIGENO, Tsuyoshi); 〒160-0022 東京都 新宿区新宿 二丁目 5 番 1 0 号 日伸ビル 9 階 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (81) 指定国 (国内): US.
- (30) 優先権データ:
特願2002-149987 2002 年5 月24 日 (24.05.2002) JP
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本板硝子株式会社 (NIPPON SHEET GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒541-8559 大阪府 大阪市 中央区北浜 四丁目 7 番 2 8 号 Osaka (JP).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: SCALY PARTICLES AND COSMETIC COMPRISING THE SAME, COATING COMPOSITION, RESIN COMPOSITION AND INK COMPOSITION

(54) 発明の名称: 鱗片状粒子およびそれを配合した化粧料、塗料組成物、樹脂組成物およびインキ組成物



- 2...WAVE LENGTH/nm
3...TRANSMITTANCE %
4...TOTAL LIGHT RAY TRANSMITTANCE IN EXAMPLE 2
5...TOTAL LIGHT RAY TRANSMITTANCE IN EXAMPLE 4
6...STRAIGHT LIGHT RAY TRANSMITTANCE IN EXAMPLE 2
7...STRAIGHT LIGHT RAY TRANSMITTANCE IN EXAMPLE 4

(57) Abstract: Scaly particles which comprise particles of a metal oxide having a low refractive index as a base material and, dispersed therein, particles of a metal oxide of a high refractive index having an average particle diameter of 160 to 450 nm in an amount of 5 to 50 wt %, and exhibit a light diffusion degree of 80 or more; and a cosmetic or the like comprising the above scaly particles. The

[続葉有]



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

above scaly particles preferably have an average particle diameter of 5 to 500 μm , an average thickness of 0.1 to 5 μm and an average aspect ratio of 5 to 300. The above scaly particles are suitably used as a filler which is reduced in the absorption of visible lights, scatters visible lights effectively, and has high durability and weather resistance, and the cosmetic gives favorable feeling such as good spread in its use and exhibits an appearance of lightness and transparency for a long time.

(57) 要約: 可視光吸収が小さく、可視光を効果的に散乱させ、耐久性および耐候性の高いフィラーに適した鱗片状粒子、ならびにこの鱗片状粒子を含有させることにより、肌上での伸びなどの使用感がよく、明るく透明感のある外観を長時間呈する化粧料等が提供される。鱗片状粒子は、低屈折率の金属酸化物を母材とし、その内部に160~450nmの平均粒径を有する高屈折率の金属酸化物の粒子を5~50重量%分散して含有する80以上の光拡散度を有する。鱗片状粒子は好ましくは5~500 μm の平均粒径、0.1~5 μm の平均厚さおよび5~300の平均アスペクト比を有する。

明細書

鱗片状粒子およびそれを配合した化粧料、塗料組成物、樹脂組成物およびインキ組成物

発明の分野

この発明は、化粧料、塗料、樹脂、フィルムまたはインキなどにフィラーとして配合される鱗片状粒子（フレーク状粒子）に関する。さらには、この鱗片状粒子を含有する化粧料、塗料、塗膜、樹脂組成物、樹脂成形体およびインキに関する。

背景技術

可視光の透過率を高く明るい状態を維持したまま、その透過光ないし反射光を散乱させて下地を見え難くする（ぼかす）フィラーが、化粧品、樹脂練り込み、フィルム、インキまたはペイントなどの分野で使用されている。このフィラーは可視光の拡散が大きいために、くすみのない透明感のある白色を呈するという効果もある。このようなフィラーとして、たとえば化粧品、塗料、樹脂等では、特開平 8-225316 号公報および特開平 8-59436 号公報などに粒径を制御した硫酸バリウム、シリカなどの球状粉体が記載されている。しかし、球状粉体では凝集し易いため、化粧料、塗料、樹脂等に配合した場合、ごろつき感（物がごろごろする感じ）が生じ、感触や使い勝手が悪化するなどの問題があった。また、球状粉体が凝集すれば、透過光ないし反射光を散乱させる機能が低下する問題もあった。したがって、散乱光で白く見えてはいるが、わずかにくすみを感じさせる場合がある。

この凝集による問題を解決して散乱を効果的に生じさせるために、球状の無機粉体に微粒子を付着させたものが開発されている（特開平 8-217637 公報、特開平 11-1411 号公報など）。これらは、微粒子を無機粉体に付着させることに

より微粒子の凝集を防止するものであるが、無機粉体が球状であるため、無機粉体自体が凝集し易く、結果として光散乱効果が少なくなった。また、化粧料に配合した場合、上記同様に感触や使い勝手が悪いなどの問題もあった。さらには、機械的摩擦などにより、無機粉体の表面に付着した微粒子が容易に剥がれる問題もあった。

特開平10-87433号公報には、板状の粉体に微粒子を付着させたフィラーが例示されている。板状粉体であれば、それ自身は凝集し難いことから、このフィラーを用いた化粧料は、ごろつき感がなく、なめらかな使用感与えると予想される。しかし、微粒子が板状粉体に付着するものであったため、容易に剥離する問題は依然として残っていた。

特開平5-39436号公報には、バタフライ状の板状粉体を用いて、透過光を散乱させる技術が記載されている。しかしながら、このバタフライ状の板状粉体の製造が極めて困難であり、製造条件の許容範囲が極めて狭く、製造条件の管理を徹底しなければならないなどの問題があった。さらには、化粧品の油剤、樹脂およびインキなどに板状粉体と屈折率の近いものを用いた場合、透過光の散乱が小さくなる、あるいはほぼなくなってしまうという問題もあった。

特開昭63-126818号公報には、粒径5～500nmの微粒子金属化合物を分散含有してなる薄片状物質、例えば粒径30nmの酸化チタン粒子を分散含有してなる薄片シリカが記載されている。しかし、この薄片状物質は紫外線を遮蔽するものの、可視光を効果的に散乱させることはできなかった。

発明の開示

この発明の第1の目的は、可視光の吸収が少なく可視光を効果的に散乱させ、耐久性および耐候性の高いフィラーに適した鱗片状粒子を提供することにある。第2の目的は、この鱗片状粒子をフィラーとして含有させることにより、肌上での伸び

などの使用感がよく、明るく透明感のある外観を長時間呈し、さらにシミや毛穴等を見えにくくする化粧料を提供することにある。第3の目的は、基板上での伸びが良く、下地を見えにくくし、きれいな透明感のある白色を呈する塗料を提供することにある。第4の目的は、散乱効果の高い、あるいは、きれいな透明感のある白色の樹脂成形体やインキを提供することにある。

本発明の鱗片状粒子は、低屈折率の金属酸化物を母材とし、その内部に160～450nmの平均粒径を有する高屈折率の金属酸化物の微粒子を5～50重量%分散して含有し、そして、80以上の光拡散度を有する。

この鱗片状粒子は、化粧料または樹脂組成物などのフィラーとして利用されるものであり、その外形が鱗片状であることから凝集し難い。そのため、この鱗片状粒子は、たとえば化粧料に配合された場合には、ごろつき感などの使用感の低下を生じさせることがない。

この鱗片状粒子は、粒径160～450nm好ましくは200～400nmの微粒子を分散含有する。この微粒子の粒径は、可視光波長（360～830nm）のおよそ1/2である。微粒子がその近傍を通過する光に最も大きな影響を与えるのは、その粒径が目的とする光の半波長のときである。この粒径を有する微粒子を分散含有した鱗片状粒子は、微粒子の近傍を通過しようとする可視光を効果的に反射ないし屈折させる。これにより、鱗片状粒子は、低い可視光吸収率と高い可視光反射率を維持しつつ、その下に存在するものをぼかす（隠蔽する）ことができる。この鱗片状粒子は、きれいな透明感のある白色を呈することができる。最終形状が薄膜状になるような化粧料、塗料、フィルム用樹脂組成物、インキ組成物等に含有された鱗片状粒子は、薄膜の内部で薄膜の膜面に平行に配向するので、上記の効果を高める。

仮に、化粧料、塗料、フィルム用樹脂組成物、インキ組成物等が、鱗片状粒子中

に内包されていない、粒径160～450 nmの高屈折率の金属酸化物粒子を含有するならば、金属酸化物粒子同士が凝集して大きな粒径の2次粒子を形成する。2次粒子を形成した金属酸化物粒子の表面では、可視光の繰り返し反射屈折が生じ難くなり、その結果、隠蔽効果が小さくなってしまう。鱗片状粒子中に内包されていない微粒子を含有した化粧料は、微粒子が凝集するために、展延性が乏しく、使用感が悪くなる。鱗片状粒子中に内包されていない微細孔を含有した塗料はその配合時に伸びが少ない。

鱗片状粒子は5～500 μm の平均粒径、0.1～5 μm の平均厚さおよび5～300の平均アスペクト比を有することが好ましく、8～300 μm の平均粒径、0.2～2.5 μm の平均厚さおよび8～200の平均アスペクト比を有することがより好ましく、8～50 μm の平均粒径、0.5～2.0 μm の平均厚さおよび8～50の平均アスペクト比を有することがさらに好ましい。鱗片状粒子の平均粒径はレーザ回折・散乱式粒度分布測定装置、例えば、マイクロトラック2（日機装（株）製）により求めることができる。平均厚さは電子顕微鏡による鱗片状粒子50個測定の単純平均により求めることができる。平均アスペクト比は上記平均粒径の値を上記平均厚さ値を除することにより求めることができる。この平均粒径が5 μm 未満では、鱗片状粒子が凝集し易いため、可視光の散乱が生じ難くなる。一方、平均粒径が500 μm を超えると、フィラーとして配合する際に鱗片状粒子が破碎され易く、また化粧料に配合した場合には、ごろつき感が生じるなどその使用感を劣化させる。平均厚さが0.1 μm 未満では、製造が困難で、かつ、破碎され易いなどの問題が生じる。一方、平均厚さが5 μm を超えると、塗料に配合した場合、塗膜表面に凹凸が形成され、その見栄えを悪化させる、あるいは化粧料に配合した場合、ごろつき感などその使用感を劣化させる。平均アスペクト比が5未満では、球状粒子としての特徴が表れ始め、凝集を起こし易くなる。一方、平均アスペクト比が300を超えると、フィラーとして配合する際に破碎され易い。

160～450 nmの平均粒径を有する高屈折率の金属酸化物の微粒子としては、

鱗片状粒子の母材の屈折率よりも高い屈折率を有するものが使用される。微粒子の屈折率は、鱗片状粒子の母材の屈折率よりも好ましくは0.5以上、特に好ましくは1.0以上高い。可視光の散乱は微粒子の界面で起こるため、微粒子の屈折率と母材の屈折率との差を0.5以上にすることにより可視光の散乱を多くすることができ、鱗片状粒子の光拡散度を80以上にすることができる。光拡散度は後述のように可視光の全透過光線についての値である。光拡散度が高いということは、全透過光線についてだけでなく全反射光線についても光の散乱が大きい（直進反射光線が少ない）ことを意味する。

この微粒子は、酸化亜鉛(ZnO 、屈折率1.9～2.1)、二酸化チタン(TiO_2 、ルチル 屈折率2.76；アナターゼ 屈折率2.52)、二酸化ジルコニウム(ZrO_2 、屈折率2.1～2.2)、酸化セリウム(CeO_2 、屈折率2.2)、三二酸化アルミニウム(Al_2O_3 、屈折率1.6～1.8)、三二酸化アンチモン(Sb_2O_3 、屈折率2.0～2.3)、酸化スズ(SnO_2 、屈折率2.0)および三二酸化鉄(Fe_2O_3 、屈折率2.9～3.2)からなる群より選ばれた少なくとも1種を材料とするものが好ましい。160～450 nmの平均粒径を有する高屈折率の金属酸化物の粒子であっても可視光吸収率が大きなもの、例えば黒色の Fe_3O_4 、 FeO や低次酸化チタンは好ましくない。これらの粒子のうち、二酸化チタン、二酸化ジルコニウム、酸化セリウム、三二酸化鉄などは、紫外線を吸収する能力もあり、これらの粒子を用いた場合は、紫外線カット剤としての効果も有することができ、さらなる付加効果を得られる。これらの材料からなり160～450 nmの平均粒径を有する粒子としては、例えば二酸化チタン粒子として「タイプークCR-60」、平均粒径210 nm、石原産業株式会社製、「タイプークCR-50」、平均粒径250 nm、石原産業株式会社製「タイプークCR-58」、平均粒径280 nm、石原産業株式会社製、「KR-460」、平均粒径300 nm、チタン工業株式会社製；酸化亜鉛(ZnO)粒子として「微粒子酸化亜鉛SF-15」、平均粒径180 nm、堺化学工業株式会社製；三二酸化鉄(Fe_2O_3)粒子として「FRO-20」、平均粒径200 nm、堺化学工業株式会社製を例示することができる。これらの微粒子は、この金属アルキシドを加水分解

した後に適当な条件下で縮重合反応させる液相加水分解法、金属アルコキシド蒸気の熱分解法、金属塩化物の火炎中での加水分解、金属塩溶液に加水分解して沈殿剤を生成するような試薬を加えて反応させる均一沈殿生成法などの方法で製造することができる。

この母材は、好ましくは、二酸化ケイ素（屈折率1.46）および三二酸化アルミニウム（屈折率1.6～1.8）からなる群より選ばれる少なくとも1種を50重量%以上含む。

鱗片状粒子の母材と微粒子の好ましい組み合わせを、母材（屈折率）／微粒子（屈折率）で表して、次のように例示することができる。

二酸化ケイ素（屈折率1.46）／二酸化チタン（屈折率2.72）、
酸化アルミニウム（屈折率1.76）／三二酸化鉄（屈折率3.01）、
二酸化ケイ素（屈折率1.46）／酸化亜鉛（屈折率2.1）、
二酸化ケイ素（屈折率1.46）／酸化ジルコニウム（屈折率2.1）、
二酸化ケイ素（屈折率1.46）／酸化セリウム（屈折率2.2）、
二酸化ケイ素（屈折率1.46）／三二酸化鉄（屈折率3.01）。

鱗片状粒子における微粒子の含有率は、5～50重量%好ましくは8～30重量%である。この含有率が5重量%未満の場合は、可視光の散乱が少なく、一方50重量%を超えると、鱗片状粒子が脆くなってその機械的強度が低下する。微粒子の形状としては不定形、球状、円柱状、紡錘状等、特に限定はない。

鱗片状粒子は、好ましくは40%以上の全光線反射率を有する。

鱗片状粒子は、高屈折率金属酸化物粒子を混入した熔融ガラスを膜状に引き伸ばす方法、およびいわゆるゾルゲル法等によって製造され得るが、これに限定されない。この中でもゾルゲル法が特に適している。たとえば、特開平1-9803号公報に記載の方法、すなわち金属アルコキシドもしくは金属有機酸塩などからなる金

属化合物溶液または金属酸化物ゾル（母材の原料）に微粒子を分散してなる原液を作製し、この原液を平滑面に塗布して塗膜を形成し、ついで塗膜を乾燥、反応などの処理により薄片状として、薄片状金属化合物を前記平滑面より剥離する方法が挙げられる。この時、母材の原料ゾルとして、金属アルコキシドや有機酸塩などの代わりに市販の金属酸化物コロイド溶液を使用してもよい。剥離した薄片状金属化合物を400～1,200℃で焼成し、必要に応じて粉碎・分級して、任意の平均粒径の鱗片状粒子とする。上記焼成の温度が比較的到低く、例えば400～800℃である場合には、多孔質の鱗片状粒子が得られ、この温度が比較的に高く、例えば800℃を超える場合には、多孔質ではなく緻密な鱗片状粒子が得られる。多孔質の鱗片状粒子はその空孔のため強度が比較的弱い、その空隙の屈折率（空気＝1）が母材より非常に小さくその空隙の界面によりさらに可視光が散乱されることが期待される。あまり応力のかからないがより散乱強度の要求される用途に好適に使用される。緻密な鱗片状粒子は、強度が比較的必要とされる用途や、細孔中に周囲の物質が吸収されては困る用途などに好適に使用される。

この鱗片状粒子は、微粒子がその内部に分散包含されるものであるため、各用途でフィラーとして配合される場合でも、微粒子が鱗片状粒子から剥離してしまうことがない。

この鱗片状粒子を化粧料に配合することにより、透明性およびソフトフォーカス効果（光を乱反射させて下地の輪郭をぼやかす効果）に優れ、感触も良好な化粧料を調製することができる。化粧料における鱗片状粒子の含有率は、1～70重量%が適当である。1重量%未満では、ソフトフォーカス効果が小さく、一方70重量%を超えると、ぼかし性（soft focus property）や光沢が強くなりすぎ、不自然な仕上がりとなる。より好ましくは、3～50重量%である。

鱗片状粉体は、化粧料の目的に応じて適宜疎水化処理を施してもよい。疎水化処理の方法としては、メチルヒドロジェンポリシロキサン、高粘度シリコンオイルまたはシリコン樹脂などのシリコン化合物による処理、アニオン活性剤また

はカチオン活性剤などの界面活性剤による処理、ナイロン、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレン、フッ素樹脂またはポリアミノ酸などの高分子化合物による処理、あるいはパーフルオロ基含有化合物、レシチン、コラーゲン、金属石鹸、親油性ワックス、多価アルコール部分エステルまたは完全エステルなどによる処理、さらにはこれらの複合処理が挙げられる。ただし、一般に粉末の疎水化処理に適用できる方法であればよく、これらの方法に限定されるものではない。

この化粧料には、前記鱗片状のほかに、通常化粧料に用いられる他の成分を必要に応じて適宜配合することができる。他の成分としては、無機粉末、有機粉末、顔料、色素、油性成分、有機溶剤、樹脂または可塑剤などが挙げられる。たとえば、無機粉末としては、タルク、カオリン、セリサイト、白雲母、金雲母、紅雲母、黒雲母、リチア雲母、バーミキュライト、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、ケイソウ土、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸バリウム、硫酸バリウム、ケイ酸ストロンチウム、タングステン酸金属塩、シリカ、ヒドロキシアパタイト、ゼオライト、窒化ホウ素またはセラミックスパウダーなどが挙げられる。

また、有機粉末としては、ナイロンパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリスチレンパウダー、ベンゾグアナミンパウダー、ポリ四フッ化エチレンパウダー、ジスチレンベンゼンポリマーパウダー、エポキシパウダーまたはアクリルパウダーなどが挙げられる。

顔料としては、微結晶性セルロース、二酸化チタンまたは酸化亜鉛などの無機白色顔料、酸化鉄（ベンガラ）、チタン酸鉄などの無機赤色系顔料、 γ 酸化鉄などの無機褐色系顔料、黄酸化鉄、黄土などの無機黄色系顔料、黒酸化鉄、カーボンブラックなどの無機黒色系顔料、マンゴバイオレット、コバルトバイオレットなどの無機紫色系顔料、酸化クロム、水酸化クロム、チタン酸コバルトなどの無機緑色系顔料、群青、紺青などの無機青色系顔料、酸化チタン被覆雲母、酸化チタン被覆オキシ塩

化ビスマス、オキシ塩化ビスマス、酸化チタン被覆タルク、魚鱗箔、着色酸化チタン被覆雲母などのパール顔料、アルミニウムパウダー、あるいは銅パウダーなどの金属粉末顔料などが挙げられる。

色素としては、赤色 201 号、赤色 202 号、赤色 204 号、赤色 205 号、赤色 220 号、赤色 226 号、赤色 228 号、赤色 405 号、橙色 203 号、橙色 204 号、黄色 205 号、黄色 401 号および青色 404 号などの有機顔料、赤色 3 号、赤色 104 号、赤色 106 号、赤色 227 号、赤色 230 号、赤色 401 号、赤色 505 号、橙色 205 号、黄色 4 号、黄色 5 号、黄色 202 号、黄色 203 号、緑色 3 号および青色 1 号のジルコニウム、バリウムまたはアルミニウムレーキなどの有機顔料、あるいはクロロフィルまたはβ-カロチンなどの天然色素などが挙げられる。

さらには油性成分として、スクワラン、流動パラフィン、ワセリン、マイクロクリスタリンワックス、オケゾライト、セレシン、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、イソステアリン酸、セチルアルコール、ヘキサデシルアルコール、オレイルアルコール、2-エチルヘキサン酸セチル、パルミチン酸 2-エチルヘキシル、ミリスチン酸 2-オクチルドデシル、ジ-2-エチルヘキサン酸ネオペンチルグリコール、トリ-2-エチルヘキサン酸グリセロール、オレイン酸-2-オクチルドデシル、ミリスチン酸イソプロピル、トリイソステアリン酸グリセロール、トリアシ油脂肪酸グリセロール、オリーブ油、アボガド油、ミツロウ、ミリスチン酸ミリスチル、ミンク油またはラノリンなどの各種炭化水素、シリコーン油、高級脂肪酸、油脂類のエステル類、高級アルコール、あるいはロウなどが挙げられる。

また、アセトン、トルエン、酢酸ブチルまたは酢酸エステルなどの有機溶剤、アルキド樹脂または尿素樹脂などの樹脂、カンファ、クエン酸アセチルトリブチルなどの可塑剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、防腐剤、界面活性剤、保湿剤、香料、水、アルコール、あるいは増粘剤などが挙げられる。

化粧料の形態としては、粉末状、ケーキ状、ペンシル状、スティック状、軟膏状、液状、乳液状またはクリーム状など種々の形態が挙げられる。これらには、たとえば化粧水、乳液またはクリームなどのフェーシャル化粧料、ファンデーション、口紅、アイシャドウ、頬紅、アイライナー、ネイルエナメルまたはマスカラなどのメイクアップ化粧料などが含まれる。

また、この鱗片状粒子は、従来のフィラーと同様に塗料、樹脂練り込み、フィルムまたはインキなどのフィラーとしても使用できる。塗料に使用した場合、塗布基板上での伸びが良く、下地を見えにくくし、また、きれいな透明感のある白色を呈する。樹脂成型物や樹脂フィルム、インキに使用した場合、可視光散乱効果の高い、あるいは、きれいな透明感のある白色を呈するものとすることができる。塗料組成物、樹脂組成物、インキ組成物中の鱗片状粒子の含有率は、1～70重量%が好ましい。1重量%未満では、可視光散乱効果が低くなって下地隠蔽効果および透明感のある白色が得られ難くなり、70重量%を超えると光沢が強くなりすぎる。より好ましい鱗片状粒子含有率は、3～50重量%である。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の実施例の鱗片状粒子についての全光線透過率、直進透過率の波長300～800nmでの分光特性を示すグラフである。

発明の好ましい形態

〔実施例〕

以下、実施例により、この発明をさらに具体的に説明する。なお、以下の実施例に限定するものではない。

各実施例および比較例において作製した鱗片状粒子について、下記手段により可視光の散乱を評価した。

〔可視光の散乱の評価方法〕

塩化ビニル樹脂塗料（ビニローゼクリア GA00011 大日本塗料株式会社製、溶剤トルエン・キシレン・酢酸ブチル混合物、固形分50重量%、樹脂の屈折率1.54）に鱗片状粒子が樹脂中で10重量%になるように添加し、よく混合攪拌した後、基板の上に塗布し、乾燥した後に基板から剥がして厚さ約100 μ mのフィルムに成形した。各フィルムについて、分光光度計（U3100 日立社製）を用いて、JIS K-7105-1981 5.5.2に準拠して、標準光Aを光源として、人の目に最も感じやすい光の波長である波長550nmにおける、平行光線透過率である直進透過率（D_t）および全光線透過率（T_t）をそれぞれ測定した。この際、予め鱗片状粒子を添加していない塩化ビニル樹脂フィルムの直進透過率および全光線透過率を測定し、それぞれが100%となるように鱗片状粒子入りフィルムの各データを校正した。この全光線透過率（T_t）から直進透過率（D_t）を差し引いた数値が拡散透過率（S_t）である。直進透過率および全透過率の値に基づいて、光拡散度Hを以下の式より求めた。この光拡散度Hが大きいほど、可視光の散乱が著しいことを示す。

$$\begin{aligned} \text{光拡散度H} &= ((\text{全光線透過率T}_t - \text{直進透過率D}_t) / \text{全光線透過率T}_t) \\ &\quad \times 100 \\ &= (\text{拡散透過率S}_t / \text{全光線透過率T}_t) \times 100 \end{aligned}$$

また上記各フィルムについて、分光光度計（U3100 日立社製）を用いて、JIS K-7105-1981 5.5.3に準拠して、標準光Aを光源として波長550nmにおける、全光線反射率を測定した。この際、鱗片状粒子を添加していない塩化ビニル樹脂フィルムの全光線反射率を測定し、それが0%となるように鱗片状粒子入りフィルムの各データを校正した。

（実施例1～6）

シリカすなわち二酸化ケイ素の含有率が約30重量%であるコロイダルシリカ

(シリカドール30A 日本化学工業社製、粒径20nm、分散媒 水)670g、エタノール500gおよび水500gを混合し、これに表1に示す各種粒径のチタニアすなわち二酸化チタンの微粒子（いずれも分散媒なし）を所定量添加して、ビーズミルを用いて均一に分散させ、チタニア微粒子を分散含有したシリカゾル溶液を作製した。10cm角のステンレス板をこの溶液中に浸漬して、ディッピング法により乾燥後の厚さが1.0μmになるように前記溶液を塗布した。その後、ステンレス板を120℃の乾燥炉に5分間入れ、塗膜を乾燥させた後、スクレーパーで擦って薄片を剥離させた。得られた薄片を1000℃で2時間焼成して、チタニア微粒子を分散含有しかつシリカを主成分とする緻密な鱗片状粒子を得た。この鱗片状粒子を公知の装置を用いて分級して、平均粒径15μm、平均厚さ1.0μm、平均アスペクト比15に調整した。

これらの鱗片状粒子について、上記手段に従って可視光透過率（全光線透過率）および可視光の散乱を測定および評価した。鱗片状粒子の平均粒径（μm）、平均厚さ（μm）、平均アスペクト比、鱗片状粒子中に分散して含有されるチタニア粒子の平均粒径（nm）、含有率（重量%）、チタニア粒子の原料、可視光透過率（%）および光拡散度の結果を表1に示す。これら各実施例における鱗片状粒子については、可視光透過率（%）は30～45%であり、光拡散度がすべて90を越えており、非常に有効に光を散乱していることが判る。また、実施例2, 4につき、全光線透過率、直進透過率の波長300～800nmでの分光特性を、図1に示した。この図より、波長400nm以下では急激な全光線透過率の減少がみられ、紫外線を有効にカットしていることが分かる。

表 1

実施例	1	2	3	4	5	6
平均粒径(μm)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
平均厚さ(μm)	1	1	1	1	1	1
平均アスペクト比	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
チタニア原料	1	2	2	2	3	4
チタニア粒径(nm)	210	250	250	250	280	300
チタニア含有率(%)	20	10	20	30	20	20
全光線透過率(%)	38	45	36	30	33	30
光拡散度H	95	94	95	98	98	98
全光線反射率(%)	62	55	64	70	67	70

注) チタニア原料 1 : タイペークCR-60 石原産業株式会社製
 2 : タイペークCR-50 石原産業株式会社製
 3 : タイペークCR-58 石原産業株式会社製
 4 : KR-460 チタン工業株式会社製

(比較例1～3)

実施例1において用いたチタニア原料に代えてチタニア微粒子の粒径を表2のように変更した以外は実施例1と同様にして、鱗片状粒子を作製し、その可視光透過率(全光線透過率)および可視光の散乱を測定した。これらの結果を表2に示す。

表 2

比較例	1	2	3
平均粒径(μm)	1.5	1.5	1.5
平均厚さ(μm)	1	1	1
平均アスペクト比	1.5	1.5	1.5
チタニア原料	5	5	6
チタニア粒径(nm)	110	110	150
チタニア含有率(%)	2.0	3.0	3.0
全光線透過率(%)	7.7	7.0	6.6
光拡散度H	6.5	6.9	7.5
全光線反射率(%)	2.3	3.0	3.4

注) チタニア原料 5 : FA-80 古河機械金属株式会社製

6 : タイペークA-100 石原産業株式会社製

これら比較例と上記実施例とを対比することにより、鱗片状粒子がチタニアの微粒子を分散含有するものであっても、微粒子の平均粒径が160nm未満であると、光拡散度が7.5以下となり、可視光の散乱が大幅に低下することが判る。

(実施例7)

アルミナすなわち酸化アルミニウムの含有率が約20%であるコロイダルアルミナ(アルミナゾルー520 日産化学工業製)1,000g、エタノール500gおよび水500gを混合し、そこに平均粒径250nmのチタニア微粒子(タイペークCR-50 石原産業株式会社製)を50g添加し、ビーズミルを用いて均一に分散させ、チタニア微粒子を含有するアルミナゾル溶液を作製した。10cm角のステンレス板をこの溶液中に浸漬して、ディッピング法により乾燥後の厚さが1.

0 μm になるように前記溶液を塗布した。その後、ステンレス板を120℃の乾燥炉に5分間入れ、塗膜を乾燥させた後、スクレーパーで擦って薄片を剥離させた。得られた薄片を1000℃で2時間焼成して、チタニア微粒子を分散含有し、かつ、アルミナを主成分とする鱗片状粒子を得た。この鱗片状粒子におけるチタニア微粒子の含有率は、20重量%であった。また、この鱗片状粒子を公知の装置を用いて分級して、平均粒径80 μm 、平均厚さ1.0 μm 、平均アスペクト比80に調整した。

この鱗片状粒子について、上記可視光の散乱の評価方法に従って、可視光透過率（全光線透過率）および光拡散度Hおよびを求めた。この鱗片状粒子の光拡散度は90であり、非常に有効に光を散乱していることが判った。また、全光線透過率は38%であり、全光線反射率は62%であった。

（比較例4）

実施例7において用いたチタニア微粒子を平均粒径110 nmのもの（FA-80 古河機械金属株式会社製）に代えた以外は実施例7と同様にして、チタニア微粒子を分散含有し、かつ、アルミナを主成分とする鱗片状粒子を作製した。この鱗片状粒子の光拡散度Hは60であり、実施例7のものよりも非常に小さかった。また、全光線透過率は70%であり、全光線反射率は30%であった。

（実施例8）

テトラエトキシシラン（正ケイ酸エチル、多摩化学工業製）877 g、水1100 g、60%硝酸8 ml、エタノール500 gの混合溶液を密閉容器中で50℃で15時間養生を行なった後、粒径200 nmの酸化鉄(Fe_2O_3)微粒子（戸田工業株式会社製）10.5 gを添加し、ビーズミルを用いて均一に混合攪拌し、酸化鉄微粒子を含有したシリカゾル溶液を作製した。10 cm角のステンレス板をこの溶液中に浸漬して、ディッピング法により乾燥後の厚さが1.0 μm になるように前記溶液を塗布した。その後、ステンレス板を120℃の乾燥炉に5分間入れ、塗膜を

乾燥させた後、スクレーパーで擦って薄片を剥離させた。得られた薄片を 800°C で2時間焼成して、酸化鉄微粒子を分散含有し、かつ、シリカを主成分とする鱗片体を得た。この鱗片体における酸化鉄微粒子の含有率は、5重量%であった。また、この鱗片体を公知の装置を用いて分級して、平均粒径 $80\text{ }\mu\text{m}$ 、平均厚さ $1.0\text{ }\mu\text{m}$ 、平均アスペクト比80に調整した。この鱗片状粒子について、上記可視光の散乱の評価方法に従って、可視光透過率(全光線透過率)および光拡散度Hを求めた。この鱗片状粒子の光拡散度は90であり、非常に有効に光を散乱していることが判った。また、全光線透過率は44%であり、全光線反射率は50%であった。

(実施例9～12)

実施例1において用いたチタニア原料に代えて表3に示す、酸化亜鉛(ZnO 、屈折率1.9～2.1の範囲中の点屈折率、以下同様)、二酸化ジルコニウム(ZrO_2 、屈折率2.1～2.2)、酸化セリウム(CeO_2 、屈折率2.2)および酸化スズ(SnO_2 、屈折率2.0)の微粒子を使用した以外は実施例1と同様にして、鱗片状粒子を作製し、その可視光透過率(全光線透過率)および可視光の散乱を測定した。これらの結果を表3に示す。

表 3

実施例	9	10	11	12
平均粒径(μm)	1.5	1.5	1.5	1.5
平均厚さ(μm)	1	1	1	1
平均アスペクト比	1.5	1.5	1.5	1.5
微粒子原料	ZnO	ZrO ₂	CeO ₂	SnO ₂
微粒子粒径(nm)	290	200	300	300
微粒子含有率(%)	20	10	20	30
全光線透過率(%)	38	50	40	35
光拡散度H	90	85	89	88
全光線反射率(%)	62	49	57	63

つぎに、上記実施例および比較例で作製した鱗片状粒子を用いて、化粧料を試作し、その使用感について官能試験を行った。官能試験の項目は、仕上がり感、透明感および下地肌のぼかし感の3項目であり、個々の項目について1～5の5段階の評価を行った。各項目の評価基準を表4にまとめて示す。

表 4

評価	仕上がり感	透明感	下地肌のぼかし感
1	非常に不自然	ない	ない
2	不自然	ややない	あまりない
3	普通	普通	どちらともいえない
4	まずまず自然	ややある	少し効果あり
5	自然	非常に高い	効果大

以下の化粧料の官能試験では、10人のパネラーを起用した。この10人の評価の平均値をもって、化粧料の使用感を評価する。なお、評価結果を見易くするため、以下の表ではつぎの記号により示す。

- ◎ … 4.5以上5.0まで
- … 3.5以上4.5未満
- … 2.5以上3.5未満
- △ … 1.5以上2.5未満
- × … 1.0以上1.5未満

(実施例13：パウダーファンデーション)

以下に示す各成分により、パウダーファンデーションを調製した。

(1) 酸化チタン	7
(2) タルク	20
(3) 白雲母	3
(4) 実施例1の鱗片状粒子	55
(5) ナイロンパウダー	2
(6) 赤色酸化鉄	0.5

(7) 黄色酸化鉄	1	
(8) 黒色酸化鉄	0.1	
(9) シリコーンオイル	1	
(10) バルミチン酸2-エチルヘキシル	9	
(11) セスキオレイン酸ソルビタン	1	
(12) 防腐剤	0.3	
(13) 香料	0.1	(重量%)

成分(1)～(8)をヘンシェルミキサーで混合し、この混合物に対して成分(9)～(13)を加熱溶解混合したものを添加した後、パルペライザーで粉碎し、これを直径5.3mmの中皿に160kg/cm²の圧力で成形し、パウダーファンデーションを得た。

(比較例5)

実施例13の処方中、成分(4)の鱗片状粒子を比較例1の鱗片状粒子に代え、それ以外は実施例13と同様にして作製した。

実施例13と比較例5との官能試験の結果を表5にまとめて示す。

表5

	仕上がり感	透明感	下地肌のぼかし感
実施例13	○	○	◎
比較例5	○	○	△

表5より、この発明に係るパウダーファンデーションであれば、下地肌のぼかし感に優れていることが判る。

(実施例 14 : パウダースプレー)

以下に示す各成分により、パウダースプレーを調製した。

(1) アルミニウムクロロハイドレート	30.0	
(2) 実施例 2 の鱗片状粒子	20.0	
(3) シリコン処理タルク	15.0	
(4) トリクロサン	0.1	
(5) ミリスチン酸イソプロピル	21.9	
(6) ジメチルポリシロキサン	10.0	
(7) ソルビタン脂肪酸エステル	3.0	
(8) 香料	適量	(重量%)

成分 (1) ~ (8) を混合したものをエアゾール容器に入れ、バルブを装着し、噴射剤を充填した。

(比較例 6)

実施例 14 の処方中、成分 (2) の鱗片状粒子を比較例 2 の鱗片状粒子に代え、それ以外は実施例 14 と同様にして作製した。

実施例 14 と比較例 6 との官能試験の結果を表 6 にまとめて示す。

表 6

	仕上がり感	透明感	下地肌のぼかし感
実施例 14	○	○	◎
比較例 6	○	○	△

表 6 より、この発明に係るパウダースプレーであれば、下地肌のぼかし感に優れていることが判る。

(実施例 15：油性スティックファンデーション)

以下に示す各成分により、油性スティックファンデーションを調製した。

(1) 実施例 3 の鱗片状粒子	13.0	
(2) チタニア	7.0	
(3) カオリン	20.0	
(4) タルク	2.0	
(5) マイカ	3.3	
(6) 赤酸化鉄	1.0	
(7) 黄酸化鉄	3.0	
(8) 黒酸化鉄	0.2	
(9) 固形パラフィン	3.0	
(10) マイクロクリスタリンワックス	7.0	
(11) ワセリン	15.0	
(12) ジメチルポリシロキサン	3.0	
(13) スクワラン	5.0	
(14) パルミチン酸イソプロピル	17.0	
(15) 酸化防止剤	適量	
(16) 香料	適量	(重量%)

成分 (9) ～ (15) を 85℃ で溶解し、この溶液に成分 (1) ～ (8) を添加し、ディスパーで混合した後、コロイドミルで分散させた。その後 (16) を添加し、脱気後 70℃ で容器に流し込み冷却し、油性スティックファンデーションを得た。

(比較例 7)

実施例 15 の処方中、成分 (1) の鱗片状粒子を比較例 2 の鱗片状粒子に代えて、それ以外は実施例 15 と同様にして作製した。

実施例 15 と比較例 7 との官能試験の結果を表 7 にまとめて示す。

表 7

	仕上がり感	透明感	下地肌のぼかし感
実施例 15	○	○	◎
比較例 7	○	○	△

表 7 より、この発明に係る油性スティックファンデーションは、下地肌のぼかし感で優れていることが判る。

(実施例 16：乳化ファンデーション)

以下に示す各成分により、乳化ファンデーションを調製した。

(1) ステアリン酸	0.4
(2) イソステアリン酸	0.3
(3) 2-エチルヘキサン酸セチル	4
(4) 流動パラフィン	11
(5) ポリオキシエチレン(10)ステアリルエーテル	2
(6) タルク	8
(7) 顔料	4
(8) セチルアルコール	0.3
(9) 防腐剤	0.07
(10) 実施例 3 の鱗片状粒子	10
(11) トリエタノールアミン	0.42

(1 2) プロピレングリコール	5
(1 3) 防腐剤	0. 0 2
(1 4) イオン交換水	5 4. 1 9
(1 5) 香料	0. 3 (重量%)

成分(1)～(9)を85℃に加熱溶解混合した後、成分(10)を添加し均一に分散させた。これに成分(11)～(14)を85℃に加熱溶解混合した混合物を徐々に添加し乳化させた。乳化時の温度を10分間保持して攪拌した後、攪拌しながら冷却して45℃にした。これに成分(15)を加え35℃まで攪拌冷却を続け、生成物を取り出し、容器に充填して乳化ファンデーションを得た。

(比較例8)

実施例16の処方中、成分(10)の鱗片状粒子を比較例2の鱗片状粒子に代え、それ以外を実施例16と同様にして作製した。

実施例16と比較例8との官能試験の結果を表8にまとめて示す。

表 8

	仕上がり感	透明感	下地肌のぼかし感
実施例 1 6	○	○	◎
比較例 8	○	○	△

表8より、この発明に係る乳化ファンデーションは、下地肌のぼかし感で優れていることが判る。

(実施例17：頬紅)

以下に示す各成分により、頬紅を調製した。

(1) カオリン	19.0	
(2) 実施例8の鱗片状粒子	5.0	
(3) ベンガラ	0.3	
(4) 赤色202号	0.5	
(5) セレシン	15.0	
(6) ワセリン	20.0	
(7) 流動パラフィン	25.0	
(8) イソプロピルミリスチン酸エステル	15.0	
(9) 酸化防止剤	適量	(重量%)

成分(1)～(4)を成分(7)の一部に加え、ローラーで処理して、顔料部を調整した。その一方で(4)を(10)の一部に溶解させ、染料部を作製した。(5)～(9)を90℃に加熱溶解し前記顔料部を加え、ホモミキサーで均一に分散させ、分散後に所定の容器に充填して目的の頬紅を得た。

得られた頬紅は、仕上がり感、透明感および下地のぼかし感がいずれも良好であった。

(実施例18：口紅)

以下に示す各成分により、口紅を調製した。

(1) 炭化水素ワックス	20	
(2) キャンデリラワックス	3	
(3) グリセリルイソステアレート	40	
(4) 流動パラフィン	26.8	
(5) 二酸化チタン	4	
(6) 実施例4の鱗片状粒子	4	
(7) 有機顔料	2	
(8) 香料	0.2	(重量%)

上記材料（１）～（４）を８５℃で加熱溶解させ、これに（５）～（７）を加え攪拌混合した後、さらに（８）を混合攪拌し、その後所定の容器に充填して口紅を得た。

得られた口紅は、仕上がり感、透明感および下地のぼかし感がいずれも良好であった。

（実施例１９：アイシャドー）

以下に示す各成分により、アイシャドーを調製した。

（１）タルク	21	
（２）白雲母	20	
（３）実施例４の鱗片状粒子	40	
（４）顔料	12	
（５）スクワラン	4	
（６）セチル２－エチルヘキサノエート	1.9	
（７）ソルビタンセスキオレート	0.8	
（８）防腐剤	0.1	
（９）香料	0.2	（重量％）

上記材料（１）～（４）をヘンシェルミキサーで混合し、これに（５）～（９）を加熱混合したものを吹き付け混合した後粉碎した。これを所定の中皿に吐出して、アイシャドーを得た。

次に前記実施例及び比較例の薄片状物質をもちいて、塗料を作製した。

（実施例２０：白色塗料組成物）

以下に示す下記成分により、塗料組成物を調製した。

まず、以下に示す組成をペイントシェーカーを用いて６０分間分散させ、分散ビヒクルを作製した。

- | | | |
|----------------|------|-------|
| (1) アルキド樹脂系ワニス | 20.6 | |
| (2) メラニン樹脂系ワニス | 10.6 | |
| (3) スワゾール | 15.6 | |
| (4) 実施例4の鱗片状粒子 | 15.6 | (重量部) |

この分散ビヒクルにさらに、

- | | | |
|----------------|------|-------|
| (5) アルキド樹脂系ワニス | 26.3 | |
| (6) メラニン樹脂系ワニス | 11.3 | (重量部) |

を添加して攪拌し、白色の塗料組成物を作製した。

(比較例9)

実施例20に示す塗料組成物のうち、成分(4)の鱗片状粒子を、顔料級酸化チタンの粉末(石原産業製CR-50)に代え、以下に示す内容以外は実施例20と同様にして、白色塗料を作製した。実施例4の鱗片状粒子中の酸化チタン含有量は30重量%であるので、比較例9では、塗料中の酸化チタン量が実施例16と同じになるように、酸化チタンの量を、実施例20の組成(4)の鱗片状粒子の量の30%(すなわち、4.7重量部)とした。

実施例20と比較例9の白色塗料をそれぞれ、JIS K5600-4-1の隠ぺい率試験紙法に準じて、30 μ m厚みの塗膜での隠ぺい率を測定し、また目視で色感を判定した。その結果を表9に示した。

表9

	隠ぺい率	色感
実施例20	92	透明感のあるきれいな白色
比較例9	89	くすみを若干感じさせる白色

表 9 により、この発明に関わる白色塗料は、隠ぺい率が高く、下地を隠す効果が高く、また、白色の色が透明感のある非常にきれいな白色であることがわかる。

(実施例 21 : 重ね塗り塗料)

角 300 mm の磨鋼板に、赤褐色の防錆塗料（ヘルゴン、日本ペイント製）を塗膜し、その上に、実施例 16 の塗料を約 50 μm の厚みに塗膜した。さらに、その上に、黄色の塗料（ユニボン 200、日本ペイント製）を 30 μm の厚みに塗布した。その塗布面を目視で色調を観察したところ、非常にきれいな黄色の発色を呈しており、下地の防錆塗料の赤褐色は全く感じられなかった。

(比較例 10)

実施例 21 の塗料を比較例 9 の塗料に代えただけで、後は実施例 21 と同様な構成の多層塗膜鋼板を作製した。実施例 21 と同様にその塗布面を目視で色調を観察したところ、最上面の塗装の黄色の発色が若干くすんで見え、下地の防錆塗料の赤褐色の影響が感じられた。

(実施例 22 : 樹脂組成物および樹脂成形物)

メタクリル酸メチル共重合ビーズ 98 重量%、実施例 4 の鱗片状粒子 2 重量%をヘンシェルミキサーで攪拌混合して樹脂組成物を得た。これを用いて押し出し機で厚み 0.5 mm のアクリル樹脂成形物を作製した。この樹脂成形物の光拡散度 H は、90 であった。

(比較例 11)

実施例 22 で用いた鱗片状粒子に変えて比較例 2 の鱗片状粒子を同量使用した以外は実施例 22 と同様にして、厚み 0.5 mm のアクリル樹脂成形物を作製した。この樹脂成形物の光拡散度 H は 58 であった。

実施例 22 及び比較例 11 から分かるように、この発明に関わる樹脂成形物は、

良好な光拡散性を示すことが分かる。

(実施例 23：インキ組成物)

以下に示す各成分を十分に混合し、白色インキを調製した。

- | | |
|-------------------------|----------|
| (1) 実施例 4 の鱗片状粒子 | 12 |
| (2) ケトン樹脂 | 19 |
| (3) エタノール | 59 |
| (4) プロピレングリコールモノメチルエーテル | 10 (重量%) |

このインキ組成物を用いて黒紙上に筆記したところ、非常にきれいな白色を呈する筆跡となり、下地の黒も見えなかった。

産業上の利用可能性

この発明の鱗片状粒子は、可視光波長のおよそ 1 / 2 の粒径をもつ微粒子を分散含有するものであるので、可視光の吸収が小さく、かつ、可視光を効果的に散乱させることができる。また、この微粒子は鱗片状粒子中に分散して内在するため、鱗片状粒子を各用途で利用するに際して、鱗片状粒子から微粒子が剥がれて、鱗片状粒子の特性を劣化させることがない。さらに、この鱗片状粒子を化粧料、塗料、樹脂成形物、インキのフィラーとして利用すれば、化粧料中で凝集することがないので、その使用感を低下させることなく、下地肌を明るくぼかすことができるし、また、きれいな発色の白色となる。

請求の範囲

1. 低屈折率の金属酸化物を母材とし、その内部に160～450nmの平均粒径を有する高屈折率の金属酸化物の微粒子を5～50重量%分散して含有する80以上の光拡散度を有する鱗片状粒子。
2. 5～500 μ mの平均粒径、0.1～5 μ mの平均厚さおよび5～300の平均アスペクト比を有する請求項1に記載の鱗片状粒子。
3. 8～300 μ mの平均粒径、0.2～2.5 μ mの平均厚さおよび8～200の平均アスペクト比を有する請求項1に記載の鱗片状粒子。
4. 8～50 μ mの平均粒径、0.5～2.0 μ mの平均厚さおよび8～50の平均アスペクト比を有する請求項1に記載の鱗片状粒子。
5. 40%以上の全光線反射率を有する請求項1～4のいずれか1項に記載の鱗片状粒子。
6. 上記微粒子は、酸化亜鉛(ZnO)、二酸化チタン(TiO₂)、酸化ジルコニウム(ZrO₂)、酸化セリウム(CeO₂)、酸化アルミニウム(Al₂O₃)、酸化アンチモン(Sb₂O₃)および酸化鉄(Fe₂O₃)からなる群より選ばれる少なくとも1種を主成分とするものである請求項1～5のいずれか1項に記載の鱗片状粒子。
7. 微粒子を内包する母材は、二酸化ケイ素および三二酸化アルミニウムからなる群より選ばれる少なくとも1種を主成分とするものである請求項1～6のいずれか1項に記載の鱗片状粒子。
8. 前記微粒子の屈折率は前記母材の屈折率よりも0.5以上高い請求項1～6のいずれか1項に記載の鱗片状粒子。
9. 前記微粒子の屈折率は前記母材の屈折率よりも1.0以上高い請求項1～6のいずれか1項に記載の鱗片状粒子。
10. 鱗片状粒子の母材と微粒子の組み合わせは、母材(屈折率)/微粒子(屈折率)で表して、次のいずれかである請求項1～9のいずれか1項に記載の鱗片状粒子。

二酸化ケイ素(屈折率1.46)/二酸化チタン(屈折率2.72)、

酸化アルミニウム（屈折率 1.76）／三二酸化鉄（屈折率 3.01）、
 二酸化ケイ素（屈折率 1.46）／酸化亜鉛（屈折率 2.1）、
 二酸化ケイ素（屈折率 1.46）／酸化ジルコニウム（屈折率 2.1）、
 二酸化ケイ素（屈折率 1.46）／酸化セリウム（屈折率 2.2）、
 二酸化ケイ素（屈折率 1.46）／三二酸化鉄（屈折率 3.01）。

11. 鱗片状粒子における微粒子の含有率が 8～30 重量%である請求項 1～10 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子。
12. 微粒子の平均粒径が 200～400 nm である請求項 1～11 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子。
13. 鱗片状粒子は、高屈折率金属酸化物粒子を混入した熔融ガラスを膜状に引き伸ばす方法、又はいわゆるゾルゲル法によって製造されたものである請求項 1～12 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子。
14. 光拡散度は次式で定義される請求項 1～13 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子。

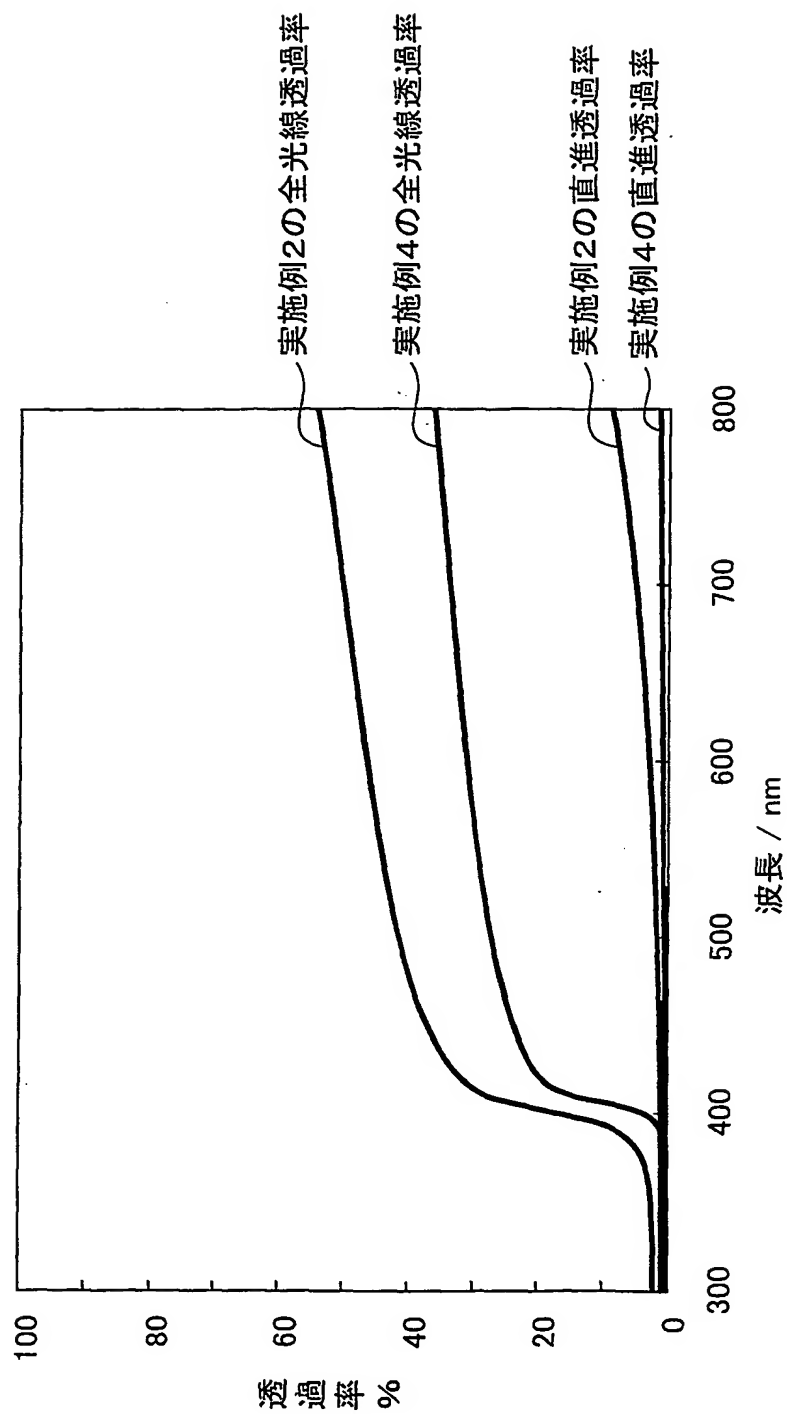
$$\begin{aligned} \text{光拡散度 } H &= ((\text{全光線透過率 } T_t - \text{直進透過率 } D_t) / \text{全光線透過率 } T_t) \\ &\quad \times 100 \\ &= (\text{拡散透過率 } S_t / \text{全光線透過率 } T_t) \times 100 \end{aligned}$$

15. 請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子を含有する化粧品。
16. 前記鱗片状粒子を 1～70 重量%含有する請求項 15 記載の化粧品。
17. 請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子を含有する塗料組成物。
18. 前記鱗片状粒子を 1～70 重量%含有する請求項 17 記載の塗料組成物。
19. 請求項 17 または 18 に記載の塗料組成物を塗布し、硬化してなる塗膜。
20. 請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子を含有する成形樹脂組成物。
21. 前記鱗片状粒子を 1～70 重量%含有する請求項 20 記載の成形樹脂組成物。
22. 請求項 20 または 21 に記載の成形樹脂組成物を成形してなる樹脂成形体。
23. 請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の鱗片状粒子を含有するインキ組成

物。

24. 前記鱗片状粒子を1～70重量%含有する請求項23記載のインキ組成物。

Fig. 1



A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C09D11/00, C01B33/12, 13/14, C03B37/005, C01F7/02,
C03C14/00, C08K3/22, C08L101/00, A61K7/00, 7/48, 7/027,
7/031, 7/032

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C09D11/00, C01B33/12, 13/14, C03B37/005, C01F7/02,
C03C14/00, C08K3/22, C08L101/00, A61K7/00, 7/48, 7/027,
7/031, 7/032

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 268938 A2 (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.), 01 June, 1988 (01.06.88), Claims; page 4, lines 12 to 27; page 5, line 20 to page 6, line 5; page 7, lines 16 to 38 & DE 3789603 C & JP 63-126818 A & US 4882143 A & US 5066530 A	1-24
X	JP 8-40831 A (Kao Corp.), 13 February, 1996 (13.02.96), Claims; Par. Nos. [0015] to [0021], [0029] to [0035] (Family: none)	1-24

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not
considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing
date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is
cited to establish the publication date of another citation or other
special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other
means
"P" document published prior to the international filing date but later
than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or
priority date and not in conflict with the application but cited to
understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered novel or cannot be considered to involve an inventive
step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered to involve an inventive step when the document is
combined with one or more other such documents, such
combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
01 July, 2003 (01.07.03)

Date of mailing of the international search report
22 July, 2003 (22.07.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 8-26931 A (Kao Corp.), 30 January, 1996 (30.01.96), Claims; Par. Nos. [0011] to [0015], [0023] to [0030] (Family: none)	1-24
X	JP 1-143821 A (Shiseido Co., Ltd.), 06 June, 1989 (06.06.89), Claims; page 2, lower left column, line 4 to page 3, upper right column, line 2 (Family: none)	1-24
X	JP 63-307142 A (Nippon Sheet Glass Co., Ltd.), 14 December, 1988 (14.12.88), Claims; page 2, lower left column, line 2 to lower right column, last line; page 3, upper right column, line 5 to lower right column, 6th line from the bottom (Family: none)	1-24
X	JP 64-9803 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 13 January, 1989 (13.01.89), Claims; page 2, lower left column, 5th line from the bottom to page 3, upper left column, line 4; page 5, upper right column, last line to page 6, upper left column, line 10; page 7, upper left column, 2nd line from the bottom to page 8, lower left column, 6th line from the bottom; page 9, upper right column, line 10 to lower left column, last line; page 10, upper left column, line 5 to upper right column, line 2 (Family: none)	1-24
X	JP 6-116119 A (Nippon Sheet Glass Co., Ltd.), 26 April, 1994 (26.04.94), Claims; Par. Nos. [0009] to [0013] (Family: none)	1-24

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09D11/00, C01B33/12, 13/14, C03B37/005, C01F7/02,
C03C14/00, C08K3/22, C08L101/00,
A61K7/00, 7/48, 7/027, 7/031, 7/032

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09D11/00, C01B33/12, 13/14, C03B37/005, C01F7/02,
C03C14/00, C08K3/22, C08L101/00,
A61K7/00, 7/48, 7/027, 7/031, 7/032

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2003年
日本国登録実用新案公報 1994-2003年
日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	EP 268938 A2 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) 1988.06.01 Claims, page4 line12-27, page5 line20-page6 line5, page7 line16 -38 & DE 3789603 C & JP 63-126818 A & US 4882143 A & US 5066530 A	1-24
X	JP 8-40831 A (花王株式会社) 1996.02.13 特許請求の範囲、 【0015】 - 【0021】 【0029】 - 【0035】 (ファミリーなし)	1-24
X	JP 8-26931 A (花王株式会社) 1996.01.30 特許請求の範囲、 【0011】 - 【0015】 【0023】 - 【0030】 (ファミリーなし)	1-24

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

01.07.03

国際調査報告の発送日

22.07.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山田 泰之



4V

8720

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 1-143821 A (株式会社資生堂) 1989.06.06 特許請求の範囲、 第2頁左下欄第4行～第3頁右上欄第2行、(ファミリーなし)	1-24
X	JP 63-307142 A (日本板硝子株式会社) 1988.12.14 特許請求の範囲、 第2頁左下欄第2行～右下欄最下行、第3頁右上欄第5行～右下欄下から6行、(ファミリーなし)	1-24
X	JP 64-9803 A (住友化学工業株式会社) 1989.01.13 特許請求の範囲、 第2頁左下欄下から5行～第3頁左上欄第4行、第5頁右上欄最下行～ 第6頁左上欄第10行、第7頁左上欄下から2行～第8頁左下欄下から6行、 第9頁右上欄第10行～左下欄最下行、第10頁左上欄第5行～右上欄第2行 (ファミリーなし)	1-24
X	JP 6-116119 A (日本板硝子株式会社) 1994.04.26 特許請求の範囲、 【0009】-【0013】(ファミリーなし)	1-24